

EP 00/9789

09/857965



REC'D 09 NOV 2000	
WIPO	PCT

EU

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**PRIORITY  
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

**Aktenzeichen:**

199 49 193.3

**Anmeldetag:**

13. Oktober 1999

**Anmelder/Inhaber:**

Messer Griesheim GmbH, Frankfurt/DE

**Bezeichnung:**

Verfahren und Vorrichtung zur Durchführung einer  
Reaktion zwischen gasförmigen und festen  
Reaktanten in einer fluidisierten Partikelschicht

**IPC:**

B 01 J 8/24

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-  
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 18. Oktober 2000  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
**Der Präsident**  
Im Auftrag

Hoiß

**MESSER GRIESHEIM GMBH**

Kennwort: Laval-Düse mit Diffusor

Ordner: A

Erfinder: Herr Dr. Groß

Sta

Herr Dr. Lailach

**Verfahren und Vorrichtung zur Durchführung einer Reaktion  
zwischen gasförmigen und festen Reaktanten  
in einer fluidisierten Partikelschicht**

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Durchführung einer Reaktion zwischen gasförmigen und festen Reaktanten in einer fluidisierten Partikelschicht, wobei ein Fluidisierungsgas eine lose Schüttung von Primär-Partikeln durchströmt, dabei die Schüttung unter Bildung der fluidisierten Partikelschicht anhebt und mit den Primär-Partikeln reagiert, wobei ein mit Feststoffpulver beladener und mittels einer Überschalldüse auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigter Strom eines Treibgases transversal zur Hauptströmungsrichtung des Fluidisierungsgases in die fluidisierte Partikelschicht eingeblasen wird

Weiterhin betrifft die Erfindung einen Reaktor zur Durchführung einer Reaktion in einer fluidisierten Partikelschicht, mit einem Anströmboden, durch den ein Fluidisierungsgas in eine über dem Anströmboden befindliche Schüttung von Primär-Partikeln zwecks Erzeugung der fluidisierten Partikelschicht eingeleitet wird, und mit einer die fluidisierte Partikelschicht umgebenden Reaktorwand, in die oberhalb des Anströmbodens mindestens eine Eintragsvorrichtung eingesetzt ist, die eine Überschalldüse umfaßt, mittels der ein Treibgas unter Bildung eines transversal zur Hauptströmungsrichtung des Fluidisierungsgases

gerichteten Treibgas-Stroms auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigt wird.

Gegenstand der Erfindung ist insbesondere ein Verfahren zum Herstellen von Metallchloriden wie  $\text{TiCl}_4$ ,  $\text{ZrCl}_4$  und  $\text{SiCl}_4$ .

Zur Herstellung derartiger Metallchloride werden körnige oxidische Rohstoffe und körniger Petrolkoks bei Temperaturen oberhalb  $800^\circ\text{C}$  üblicherweise in Fließbettreaktoren mit den Fluidisierungsgasen Chlor und Sauerstoff zu Metallchloriden,  $\text{CO}_2$  und  $\text{CO}$  umgesetzt.

Etwa 5 bis 15 % der festen Reaktanten werden als Staub mit den Reaktionsgasen ausgetragen, nachdem die Korngröße durch die Reaktionen stark reduziert worden ist. Diese Rohstoffverluste durch Staubaustrag erhöhen die Herstellkosten für die Metallchloride signifikant.

Die Rückführung dieses Staubes in die Fließbettreaktoren zwecks vollständiger Reaktion führte bisher zu unbefriedigenden Ergebnissen. Einerseits sind Stäube nur schwierig gegen den in der fluidisierten Partikelschicht im Fließbettreaktor herrschenden erhöhten Druck einzutragen, andererseits ergibt sich im Falle des Eintrages hinter der Eintragsöffnung infolge der für Fließbettreaktoren typischen geringen Quervermischung ein im Vergleich zum Angebot besonders reaktionsfähiger feiner Teilchen unzureichendes Angebot an Reaktionsgasen, so daß ein Großteil des Staubes wieder ausgetragen wird.

Man hat vorgeschlagen, den Staub zu pelletieren, jedoch ist der Aufwand erheblich und der Erfolg hängt stark von der Festigkeit der kalzinierten Pellets ab.

Figur 5 zeigt eine Eintrageinrichtung für den Eintrag eines Feststoffes in einen Reaktor in Form eines Injektors, wie sie aus der pneumatischen Fördertechnik bekannt sind. Derartige Injektoren bestehen aus einem Ansaugraum (53) mit Feststoff-Eintragsöffnung (55), einer, meist konischen Düse (51) und einem koaxial dazu angeordneten Diffusor (52). Mit diesen Injektoren können feinteilige Feststoffe aus einem über der Eintragsöffnung (55) gelegenen Raum geringeren Druckes in einen hinter dem Diffusor (52) gelegenen Raum höheren Druckes (Reaktor) gefördert werden. Das Problem dieser Vorrichtung ist, daß die Geschwindigkeit des aus der Düse (51) austretenden Fördergasstrom (56) nur in einem relativ kleinen Bereich variiert werden kann, weil sonst Rückstau im Ansaugraum (53) entsteht. Um Feststoffablagerung im Ansaugraum (53) zu vermeiden kann ein Auflockerungsgas (54) durch ein Sieb von unten in den Ansaugraum (53) geblasen werden. Die erreichbare Feststoffbeladung des Fördergasstromes (56), der überwindbare Gegendruck im Raum hinter dem Diffusor (52) sowie die Gasaustrittsgeschwindigkeit aus dem Diffusor (52) sind relativ gering. Das System bringt demzufolge ebenfalls wenig Vorteile bei der Lösung des Problems, Stäube in die fluidisierte Partikelschicht von Fließbettreaktoren einzutragen und in der Schicht gut zu verteilen.

Aus der DE-A197 22 570 sind ein Verfahren und ein Reaktor gemäß der eingangs genannten Gattung bekannt. Darin wird angeregt, Gasströme durch transversale Injektion mit Überschallgeschwindigkeit in fluidisierte Partikelschichten eines Fließbettreaktors einzublasen, um so Probleme durch lokale Konzentrationsunterschiede zu vermeiden. Dabei wird auch vorgeschlagen, Gas-Feststoff-Gemische auf diese Weise in die fluidisierte Partikelschicht einzublasen.

Die technische Realisierung dieses Vorschlages ist aber schwierig, weil zur Erzeugung eines Gasstrahles mit Überschallgeschwindigkeit das Gas vor der Überschalldüse (im folgenden auch als „Laval-Düse“ bezeichnet) mehrere bar Druck haben muß und sowohl die

---

Kompression staubhaltiger Gase als auch der Eintrag von Staub in einen komprimierten Gasstrom äußerst problematisch sind. Mittels des bekannten Verfahrens ist daher nur eine schwache Feststoffbeladung des Gasstromes bei relativ geringer Eindringtiefe in die fluidisierte Partikelschicht erreichbar.

Bei dem aus der DE-A197 22 570 bekannten Fließbettreaktor ist ein Schlitzrost vorgesehen, über dem die fluidisierte Partikelschicht erzeugt wird. Diese ist von einem Reaktormantel umgeben, in den Laval-Düsen eingebaut sind. Mittels der Laval-Düsen wird ein feststoffbeladener Gasstrom quer (transversal) zur Hauptströmungsrichtung des Fluidisierungsgases in Richtung auf die fluidisierte Partikelschicht auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigt.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein einfaches und wirtschaftliches Verfahren zur Verfügung zu stellen, bei dem zwecks Durchführung einer Reaktion in einer fluidisierten Partikelschicht ein Gasstrom mit hoher Feststoffbeladung und großer Eindringtiefe transversal in die fluidisierte Partikelschicht eingeblasen werden kann. Weiterhin liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, einen einfachen und betriebssicheren Reaktor zur Durchführung des Verfahrens bereitzustellen.

Hinsichtlich des Verfahrens wird diese Aufgabe ausgehend von dem eingangs genannten Verfahren erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß der Treibgas-Strom nach Verlassen der Überschalldüse mit dem Feststoffpulver beladen und über einen der Überschalldüse

gegenüberliegenden Diffusor in die fluidisierte Partikelschicht eingeblasen wird.

Der Treibgas-Strom wird zunächst mittels der Überschalldüse auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigt und erst danach mit dem Feststoffpulver beladen. Die Komprimierung und Beschleunigung des unbeladenen Treibgas-Stromes bereitet technisch keine besonderen Schwierigkeiten. Im Bereich hinter der Überschalldüse stellt sich infolge der hohen Strömungsgeschwindigkeit des Treibgas-Stromes ein Unterdruck ein. Dieser Effekt wird durch den Diffusor noch verstärkt, so daß die Beladung des Treibgas-Stromes im Bereich vor dem Diffusor erleichtert wird, indem das Feststoffpulver durch die Wirkung des Unterdruckes in den Treibgas-Strom eingesaugt wird. Die oben genannten Schwierigkeiten hinsichtlich der Kompression staubhaltiger Gase und des Eintrages von Staub in einen komprimierten Gasstrom treten bei dem erfindungsgemäßen Verfahren daher nicht auf.

Dadurch, daß der Treibgas-Strom mit Überschallgeschwindigkeit aus der Überschalldüse (Laval-Düse) aus- und in den Diffusor eintritt, ist es möglich, das Feststoffpulver aus einem Raum geringeren Druckes in den Reaktor, in dem ein höherer Druckes herrscht, zu fördern. Das erfindungsgemäße Verfahren ermöglicht eine hohe Feststoffbeladung des Treibgas-Stroms, eine konstante Ansaugleistung und eine hohe Gasaustrittsgeschwindigkeit aus dem Diffusor und damit einhergehend eine große Eindringtiefe des Feststoffpulvers in die fluidisierte Partikelschicht.

In der fluidisierten Partikelschicht reagiert das Feststoffpulver mit dem eingeleiteten Fluidisierungsgas. Die Reaktion kann in einer chemischen Umsetzung bestehen oder in einer mechanischen oder thermischen Behandlung. Als Beispiel sei die Rückführung von staubförmigen, festen

Rohstoffen in die fluidisierte Partikelschicht eines Fließbettreaktor bei der Herstellung von  $\text{TiCl}_4$ ,  $\text{ZrCl}_4$  und  $\text{SiCl}_4$  genannt, die durch den Strom des Fluidisierungsgases aus dem Reaktor ausgetragen worden sind.

Bei dem Diffusor handelt es sich um ein in der Strömungstechnik übliches Bauteil, mittels dessen eine Strömung großer Geschwindigkeit und kleinen Drucks in eine Strömung kleinerer Geschwindigkeit und größeren Drucks umgesetzt wird. Der Diffusor weist einen Strömungskanal mit einer Eintrittsöffnung und mit einer Austrittsöffnung für das Strömungsmedium auf.

Der Treibgasstrom tritt in die fluidisierte Partikelschicht in transversaler Richtung – bezogen auf die Hauptströmungsrichtung des Fluidisierungsgases – ein. Der Ausdruck „transversal“ umfaßt in diesem Zusammenhang die quer zur Hauptströmungsrichtung verlaufenden Richtungen.

Vorteilhafterweise wird das Feststoffpulver in einem Ansaugraum bereitgestellt und von dort mittels des Treibgas-Stroms angesaugt. Der Ansaugraum umgibt dabei die Gasausgangsseite der Überschalldüse. Er kann sich über den gesamten Bereich zwischen Überschalldüse und Diffusor erstrecken und als Vorratsspeicher für ein größeres Volumen des Feststoffpulvers dienen, wodurch eine gleichmäßige Beladung des Treibgas-Stromes gewährleistet ist.

Eine weitere Verbesserung besteht darin, das Feststoffpulver im Ansaugraum unter erhöhtem Druck bereitzustellen. Dies kann beispielsweise dadurch erreicht werden, daß das Feststoffpulver aus Schleusen mit erhöhtem Druck in den Ansaugraum eingetragen wird. Die Feststoffbeladung und die Eindringtiefe des Treibgas-Stromes können dadurch noch weiter erhöht werden.

In einer besonders einfachen Verfahrensweise wird als Treibgas Fluidisierungsgas eingesetzt. Aufgrund ihrer gleichen chemischen Zusammensetzung wirken Treibgas und Fluidisierungsgas in gleicher Weise auf das Feststoffpulver ein.

Zur Durchführung von Chlorierungsreaktionen wird bevorzugt ein Treibgas eingesetzt, das Chlor und/oder Sauerstoff enthält.

Das erfindungsgemäße Verfahren entfaltet seine volle Wirkung, wenn das Treibgas auf eine Überschallgeschwindigkeit entsprechend mindestens 1,2 Mach, vorzugsweise 1,3 Mach bis 3 Mach beschleunigt wird.

Als besonders günstig hat es sich erwiesen, im Bereich der Gasaustrittsöffnung des Diffusors eine Unterdruckzone zu erzeugen. Durch die zusätzliche Zone verminderten Drucks wird die Eindringtiefe des beladenen Treibgas-Stromes in die fluidisierte Partikelschicht erhöht. Diese Maßnahme stellt insbesondere bei Fließbettreaktoren mit großem Durchmesser eine Alternative zur Anordnung mehrerer Eintrageinrichtungen dar. Dabei hat es sich bewährt, die Unterdruckzone durch Einblasen eines Treibgas-Stromes in eine an den Diffusor angeschlossene Druckminderungseinrichtung zu erzeugen. Dadurch gelingt es, die Feststoffbeladung des Treibgas-Stromes um ein Mehrfaches gegenüber konventionellen Verfahren zu steigern. Beispielsweise kann die Feststoffbeladung des Treibgas-Stromes bei dem erfindungsgemäßen Verfahren zwei bis drei mal so hoch sein, wie bei der eingangs erwähnten pneumatischen Förderung der Feststoffe mit herkömmlichen Injektoren, ohne daß Rückstau auftritt.



In einer bevorzugten Verfahrensvariante wird aus der fluidisierten Partikelschicht ausgetragener Rohstoffstaub als Feststoffpulver eingesetzt. Das erfindungsgemäße Verfahren ermöglicht es, den bei einem Herstellungs- oder Verarbeitungsprozeß aus dem Reaktor ausgetragenen Staub wieder in den Reaktor zurückzuführen, um so die Wirtschaftlichkeit des Prozesses zu verbessern. Vorteilhaft wird der Rohstoffstaub direkt aus dem heißen Reaktionsgas in einem Staubabscheider abgetrennt und dem Reaktor mittels des erfindungsgemäßen Verfahrens wieder zugeführt. Es ist aber auch möglich, diese wertvollen Rohstoffe zunächst aufzuarbeiten. Beispielsweise können die Rohstoffpulver zusammen mit festen Metallchloriden aus dem Reaktionsgas eines Fließbettreaktors abgetrennt und nach dem Auswaschen der Metallchloride getrocknet und dann in den Fließbettreaktor eingeblasen werden.

In einer weiteren und gleichermaßen bevorzugten Verfahrensvariante werden Primär-Partikel als Feststoffpulver eingesetzt. Dabei werden die Primär-Partikel, die in der fluidisierten Partikelschicht behandelt werden sollen, teilweise oder vollständig mittels des erfindungsgemäßen Verfahrens in den Reaktor eingebracht. Diese Maßnahme, die sich durch ihre Wirtschaftlichkeit auszeichnet, erlaubt es auch, zusätzlich zu den Primär-Partikeln den aus der fluidisierten Partikelschicht ausgetragenen Rohstoffstaub als Feststoffpulver einzusetzen.

In einer weiteren vorteilhaften Verfahrensvariante wird Abfallstaub als Feststoffpulver eingesetzt. Bei dem Abfallstaub handelt es sich um staubförmige Rohstoffe, die bei anderen Prozessen anfallen. Als Beispiel seien gewaschene und getrocknete  $\text{TiO}_2$ -Abfallstäube genannt, die als unlösliche Rückstände beim Aufschluß von Titanrohstoffen mit Schwefelsäure anfallen.

Bevorzugt wird der Treibgas-Strom in die untere Hälfte, vorzugsweise in das untere Viertel der fluidisierten Partikelschicht eingeblasen. Das Feststoffpulver gelangt so in eine untere Zone der fluidisierten Partikelschicht, so daß eine für die Reaktion oder Behandlung ausreichende Verweilzeit darin gewährleistet ist. Zur Verlängerung der Verweilzeit kann die fluidisierte Partikelschicht zusätzliche Teilchen aus einem inerten Material enthalten.

Im Sinne einer hohen Feststoffbeladung des Treibgas-Stromes wirkt eine Einstellung des Abstandes zwischen Überschalldüse und Diffusor derart, daß der Druck im Ansaugraum minimal ist.

Hinsichtlich des Reaktors zur Durchführung dieses Verfahrens wird die oben angegebene Aufgabe ausgehend von der eingangs genannten Vorrichtung gemäß der Erfindung dadurch gelöst, daß der Überschalldüse in Strömungsrichtung des Treibgas-Stroms gesehen ein Diffusor gegenüberliegt, daß zwischen Überschalldüse und Diffusor ein Ansaugraum für die Einspeisung eines Feststoffpulvers vorgesehen ist.

Überschalldüse, Diffusor und Ansaugraum sind Bestandteile einer Eintragsvorrichtung für den Eintrag eines Feststoffpulvers in den Reaktor. Mittels der Überschalldüse wird der Treibgas-Strom auf Überschallgeschwindigkeit in Richtung des Diffusors beschleunigt. Zwischen Überschalldüse und Diffusor ist ein Ansaugraum für die Bereitstellung eines Feststoffpulvers vorgesehen. Im einfachsten Fall erstreckt sich die Überschalldüse den Ansaugraum. Als Ansaugraum in diesem Sinne wirkt auch ein Auslaß eines Sammelbehälters oder einer Leitung für Feststoffpulver, der zwischen Überschalldüse und Diffusor mündet. Aus dem Ansaugraum wird Feststoffpulver in den Treibgas-Strom eingesaugt. Der Ansaugraum kann als Vorratsspeicher für ein größeres Volumen des Feststoffpulvers dienen, so daß eine

gleichmäßige Beladung des Treibgas-Stromes und damit eine sichere Betriebsweise der Vorrichtung gewährleistet ist.

Hinsichtlich der Verfahrensdetails und Begriffsdefinitionen wird auf die obigen Erläuterungen zum erfindungsgemäßen Verfahren verwiesen.

---

Der Reaktor kann mit mehreren derartigen Eintrageinrichtungen für den Eintrag eines Feststoffpulvers versehen sein.

Bei dem Diffusor handelt es sich um ein in der Strömungstechnik übliches Bauteil, mittels dessen eine Strömung großer Geschwindigkeit und kleinen Drucks in eine Strömung kleinerer Geschwindigkeit und größeren Drucks umgesetzt wird. Der Diffusor weist einen Strömungskanal mit einer Eintrittsöffnung und mit einer Austrittsöffnung für das Strömungsmedium auf. Als besonders einfach und effektiv gestaltet sich ein Reaktor, bei dem der Diffusor in Form einer Venturi-Düse ausgebildet ist.

Eine weitere Verbesserung des Reaktors wird dadurch erreicht, daß der Diffusor eine Gasaustrittsöffnung aufweist, die mit einer Druckminderungseinrichtung in Wirkverbindung steht. Mittels der Druckminderungseinrichtung wird im Bereich der Gasaustrittsöffnung ein Unterdruck erzeugt. Der zusätzliche Unterdruck bewirkt eine größere Eindringtiefe des beladenen Treibgas-Stromes in die fluidisierte Partikelschicht. Diese Maßnahme stellt insbesondere bei Fließbettreaktoren mit großem Durchmesser eine Alternative zur Anordnung mehrerer Eintrageinrichtungen dar.

Eine als Ringspaltdüse oder Dralldüse ausgebildete Druckminderungseinrichtung hat sich hierfür besonders bewährt. Eine Eintragsvorrichtung kann auch mit mehreren derartiger Druckminderungseinrichtungen ausgestattet sein. Durch die

Druckminderungseinrichtung gelingt es, die Feststoffbeladung des Treibgas-Stromes um ein Mehrfaches gegenüber konventionellen Verfahren zu steigern.

Vorzugsweise ist die Überschalldüse in Richtung auf den Diffusor und in Gegenrichtung dazu bewegbar. Dadurch läßt sich besonders einfach der Abstand zwischen Überschalldüse und Diffusor einstellen, der sich auf den Unterdruck im Bereich des Auslasses des Ansaugraumes und damit auf die Ansaugleistung des Treibgas-Stromes auswirkt.

Nachfolgend werden Verfahren und Reaktor gemäß der Erfindung anhand von Ausführungsbeispielen und einer Zeichnung näher erläutert. In der Zeichnung zeigen anhand von Schnittdarstellungen im einzelnen:

- Figur 1** eine erste Ausführungsform einer erfindungsgemäßen Eintrageinrichtung für den Eintrag eines Partikelstroms in einen Reaktor in einer Seitenansicht,
- Figur 2** eine weitere Ausführungsform einer derartigen Eintrageinrichtung mit einer ausgangsseitig des Diffusors vorgesehenen Ringdüse in einer Seitenansicht,
- Figur 3** einen ausgangsseitig mit einer Dralldüse versehenen Diffusor in einer Seitenansicht,
- Figur 4** einen Querschnitt durch den Diffusor gemäß Figur 3 entlang der Linie A-A in einer Draufsicht, und

**Figur 5** eine Eintrageinrichtung für den Eintrag eines Partikelstroms in einen Reaktor gemäß dem Stand der Technik in einer Seitenansicht.

Die in **Figur 1** dargestellte Eintragsvorrichtung dient zum Eintrag von Feststoff-Staub in einen Fließbettreaktor. Die Eintragsvorrichtung umfaßt eine Laval-Düse 4, einen Diffusor 2 in Form einer Venturi-Düse, und einen Ansaugraum 3. Die Laval-Düse 4 mündet in den Ansaugraum 3. Der Diffusor 2 liegt der Laval-Düse 4 im Ansaugraum 3 koaxial gegenüber. Mittels der Laval-Düse 4 wird Treibgas, das durch den Richtungspfeil 11 symbolisiert ist, auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigt. Das Treibgas 11 durchströmt als Treibgas-Strom den Ansaugraum 3. Im Ansaugraum 3 steht Feststoff-Staub bereit, der in den Fließbettreaktor einzutragen ist. Der Feststoff-Staub wird dem Ansaugraum 3 über die Eintragsöffnung 5 zugeführt, wie durch den Richtungspfeil 12 angedeutet. Der Treibgas-Strom saugt den Feststoff-Staub aus dem Ansaugraum 3 an und gelangt in den Diffusor 2. Aus dem Diffusor 2 tritt er als feststoffhaltiger Gasstrahl 13 in den Fließbettreaktor (in der Figur nicht dargestellt) ein. Je nach Betriebsparametern der Eintragsvorrichtung gemäß **Figur 1** stellt sich im Bereich des Ansaugraumes 3 ein unterschiedlicher Innendruck ein. Um diesen möglichst gering zu halten, ist der Abstand zwischen der Laval-Düse 4 und dem Diffusor 2 durch entsprechende Verschiebung der Laval-Düse 4 in Richtung des Diffusors 2 einstellbar, wie dies durch den Pfeil 9 gekennzeichnet ist. Die Eintragsvorrichtung ist mittels des Flansches 1 von außen an den Reaktormantel im Bereich des unteren Viertels der fluidisierte Partikelschicht des Fließbettreaktors angeflanscht. Zum Zwecke einer Auflockerung des Feststoff-Staubes ist der Ansaugraum 3 mit einem Gaseinlaß für ein Spülgas 14 versehen.

Bei der Darstellung in **Figur 2** werden für die Bezeichnung gleicher und äquivalenter Bestandteile der Eintragsvorrichtung dieselben Bezugsziffern benutzt wie in **Figur 1**.

Zusätzlich ist die Eintragsvorrichtung gemäß **Figur 2** ausgangsseitig zum Diffusor 2 mit einer Druckminderungseinrichtung in Form einer Ringspaltdüse 6 ausgestattet. Die Ringspaltdüse 6 ist mit einem Gaseinlaß versehen, durch ein zusätzlicher Treibgasstrom 15 durch die Ringspaltdüse 6 eingeleitet wird. Der Treibgasstrom 15 erzeugt im Bereich des Gasaustritts vom Diffusor 2 einen Druckabfall, der zur Beschleunigung des aus dem Diffusor 2 austretenden Gasstrahls 13 führt und so eine größere Eindringtiefe in die fluidisierte Partikelschicht bewirkt.

Eine ähnliche Wirkung entfaltet eine im Bereich des Gasaustritts an den Diffusor 2 angeflanschte Dralldüse 7, wie sie in den **Figuren 3 und 4** dargestellt ist. Mittels der tangential verlaufenden Dralldüse 7 wird der Treibgasstrom 15 verdrallt. Für das Verdrallen des Treibgasstroms 15 können alternativ zur Dralldüse 7 auch Leitschaukeln eingesetzt werden.

Aus der pneumatischen Fördertechnik sind Injektoren bekannt, die aus einem Ansaugraum mit Feststoffeintragsöffnung, einer, meist konischen, Düse und einem coaxial dazu angeordneten Diffusor bestehen. Mit diesen Injektoren können feinteilige Feststoffe aus einem über der Eintragsöffnung gelegenen Raum geringeren Druckes in einen hinter dem Diffusor gelegenen Raum höheren Druckes gefördert werden. Das Problem dieser Vorrichtung ist, daß die Geschwindigkeit des aus der Düse austretenden Treibgas-Stromes nur in einem relativ kleinen Bereich variiert werden kann, weil sonst Rückstau im Ansaugraum entsteht. Die erreichbare Feststoffbeladung des Fördergasstromes, der überwindbare Gegendruck im Raum hinter dem Diffusor sowie die

Gasaustrittsgeschwindigkeit aus dem Diffusor sind relativ gering. Das System bringt demzufolge ebenfalls wenig Vorteile bei der Lösung des Problems, Stäube in die fluidisierte Partikelschicht von Fließbettreaktoren einzutragen und in der Schicht gut zu verteilen.

Die in **Figur 5** dargestellte Eintrageinrichtung in Form eines aus dem Stand der Technik bekannten Injektors ist weiter oben näher beschrieben.

Nachfolgend das erfindungsgemäße Verfahren anhand eines Ausführungsbeispiels und eines Vergleichsbeispiels unter Bezugnahme auf die in den Figuren 1 und 5 dargestellten Vorrichtungen näher erläutert:

#### Beispiel 1 (Vergleichsbeispiel)

An einem Fließbettreaktor wurde 30 cm über dem Anströmboden an einen Stutzen ein Injektor gemäß Figur 5 montiert, wie er in der pneumatischen Fördertechnik bei der Förderung von Feststoffen üblicherweise eingesetzt wird. Der Injektor wurde mit der Gasaustrittsöffnung des Diffusors 52 an der Reaktorwand angeflanscht. Der Diffusor 52 hatte die Form einer Venturi-Düse. Die Gasaustrittsöffnung der konischen Düse 51 hatte einen Durchmesser von 11 mm. Als Treibgas 56 wurde Sauerstoff verwendet, dessen Druck auf 1,7 bar reduziert wurde. Der optimale Abstand zwischen Düse 51 und Diffusor 52 war vorher durch Förderung des staubförmigen Erzes durch eine Rohrleitung ermittelt worden. Der durch die im Fließbettreaktor fluidisierte Schicht verursachte Druck pulsierte im Bereich des Gaseintrittsstutzens zwischen 1,15 und 1,20 bar. Der Erzstaub wurde durch eine drehzahlgeregelte Zellenradschleuse in den Ansaugraum 53 dosiert. Bei 1,7 bar Treibgasvordruck strömten  $100 \text{ m}^3$

O<sub>2</sub>/h durch Düse 51 und Diffusor 52 in den Reaktor. Um Feststoffablagerung im Ansaugraum 53 zu vermeiden, wurden 5 m<sup>3</sup> O<sub>2</sub>/h als Auflockerungsgas 54 durch ein Sieb von unten in den Ansaugraum 53 geblasen. Unter diesen Verhältnissen war kein gleichmäßiger

Unterdruck in Ansaugraum 53 einstellbar. Wenn mehr als 400 kg Erzstaub /h dosiert wurden, verstopfte der Ansaugraum. Eine gleichmäßige Dosierung war bereits ab ca. 250 kg/h nicht mehr möglich. Der Anteil des Erzes in dem aus dem Reaktor mit den Reaktionsgasen ausgetragenen Erz/Koks-Staubgemisch war auch bei einer Dosierung von 200 kg Erzstaub/h deutlich erhöht (Alle Volumenangaben betreffen m<sup>3</sup> im Normalzustand, alle Druckangaben Absolutdruck).

#### Beispiel 2

Anstelle des in Beispiel 1 verwendeten Injektors wurde an den Fließbettreaktor die in Figur 1 dargestellte Eintragsvorrichtung angeflanscht. Aus konstruktiver Sicht wurde demnach im wesentlichen die konische Düse 51 (Figur 5) durch eine Laval-Düse 4 (Figur 1) ersetzt.

Die Laval-Düse 4 war so berechnet und gefertigt worden, daß sie bei einem Sauerstoffvordruck von 3,9 bar und 200 m<sup>3</sup>/h O<sub>2</sub> eine Treibgasgeschwindigkeit von 1,5 Mach erzeugte. Mittels der pneumatischen Förderleitung wurde der Abstand zwischen Laval-Düse 4 und Diffusor 2 optimiert. Mit dieser Anordnung und den genannten Verfahrensparametern konnten 2,5t/h Erzstaub in den Reaktor eingetragen werden, ohne daß im Ansaugraum 3 Überdruck und Feststoffrückstau auftrat. Bei einem Staubeintrag von bis zu 600 kg/h änderte sich die Zusammensetzung des aus dem Reaktor ausgetragenen Staubes nur unwesentlich. Es wurden zwischen 80% und 90% des eingeblasenen Staubes im Reaktor umgesetzt.



Patentansprüche

- 5
1. Verfahren zur Durchführung einer Reaktion zwischen gasförmigen und festen Reaktanten in einer fluidisierten Partikelschicht, wobei ein Fluidisierungsgas eine lose Schüttung von Primär-Partikeln durchströmt, dabei die Schüttung unter Bildung der fluidisierten Partikelschicht anhebt und mit den Primär-Partikeln reagiert, wobei ein mit Feststoffpulver beladener und mittels einer Überschalldüse auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigter Strom eines Treibgases transversal zur Hauptröhmungsrichtung des Fluidisierungsgas in die fluidisierte Partikelschicht eingeblasen wird, dadurch gekennzeichnet, daß der Treibgas-Strom (11) nach Verlassen der Überschalldüse (4) mit dem Feststoffpulver beladen und über einen der Überschalldüse (4) gegenüberliegenden Diffusor (2) in die fluidisierte Partikelschicht eingeblasen wird.
- 10
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Feststoffpulver in einem Ansaugraum (3) bereitgestellt und von dort mittels des Treibgas-Stroms (11) angesaugt wird.
- 15
3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Feststoffpulver im Ansaugraum (3) unter erhöhtem Druck bereitgestellt wird.
- 20
4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß als Treibgas das Fluidisierungsgas eingesetzt wird.
- 25
- 30

5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Treibgas Chlor und/oder Sauerstoff enthält.

6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Treibgas auf eine Überschallgeschwindigkeit entsprechend mindestens 1,2 Mach, vorzugsweise 1,3 Mach bis 3 Mach beschleunigt wird.

7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Diffusor (2) eine Gasaustrittsöffnung aufweist, und daß im Bereich der Gasaustrittsöffnung eine Unterdruckzone erzeugt wird.

8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Unterdruckzone durch Einblasen eines Treibgasstromes (15) in eine an den Diffusor (2) angeschlossene Druckminderungseinrichtung (6; 7) erzeugt wird.

9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß aus der fluidisierten Partikelschicht ausgetragener Rohstoffstaub als Feststoffpulver eingesetzt wird.

10. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß Primär-Partikel als Feststoffpulver eingesetzt werden.

11. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß Abfallstaub als Feststoffpulver eingesetzt wird.

12. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Treibgas-Strom (11) in die untere Hälfte, vorzugsweise in das untere Viertel der fluidisierten Partikelschicht eingeblasen wird.

5

13. Verfahren nach Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Abstand zwischen Überschalldüse (4) und Diffusor (2) so eingestellt wird, daß der Druck im Ansaugraum (3) minimal ist.

15

14. Reaktor zur Durchführung einer Reaktion in einer fluidisierten Partikelschicht, mit einem Anströmboden, durch den ein Fluidisierungsgas in eine über dem Anströmboden befindliche Schüttung von Primär-Partikeln zwecks Erzeugung der fluidisierten Partikelschicht eingeleitet wird, und mit einer die fluidisierte Partikelschicht umgebenden Reaktorwand, in die oberhalb des Anströmbodens mindestens eine Eintragsvorrichtung eingesetzt ist, die eine Überschalldüse umfaßt, mittels der ein Treibgas unter Bildung eines transversal zur Hauptrömungsrichtung des Fluidisierungsgases gerichteten Treibgas-Stroms auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigt wird, dadurch gekennzeichnet, daß der Überschalldüse (4) in Strömungsrichtung des Treibgas-Stroms (11) gesehen ein Diffusor (2) gegenüberliegt, und daß zwischen Überschalldüse (4) und Diffusor (2) ein Ansaugraum (3) für die Aufnahme eines Feststoffpulvers vorgesehen ist.

20

25

15. Reaktor nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß der Diffusor (2) in Form einer Venturi-Düse ausgebildet ist.

16.Reaktor nach Anspruch 14 oder 15, dadurch gekennzeichnet, daß der Diffusor (2) eine Gasaustrittsöffnung aufweist, die mit einer Druckminderungseinrichtung (6; 7) in Wirkverbindung steht.

5 17.Reaktor nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß die Druckminderungseinrichtung als Ringspaltdüse (6) oder als Dralldüse (7) ausgebildet ist.

18.Reaktor nach einem der Ansprüche 14 bis 17, dadurch gekennzeichnet, daß die Überschalldüse (4) in Richtung (9) auf den Diffusor (2) und in Gegenrichtung dazu bewegbar ist.

**Verfahren und Vorrichtung zur Durchführung einer Reaktion  
zwischen gasförmigen und festen Reaktanten  
in einer fluidisierten Partikelschicht**

**Zusammenfassung**

Zur Durchführung einer Reaktion zwischen gasförmigen und festen Reaktanten in einer fluidisierten Partikelschicht durchströmt üblicherweise ein Fluidisierungsgas eine lose Schüttung von Primär-Partikeln, hebt die Schüttung unter Bildung der fluidisierten Partikelschicht an und reagiert mit den Primär-Partikeln. Es ist auch bekannt, einen mit Feststoffpulver beladenen und mittels einer Überschalldüse (4) auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigten Strom (11) eines Treibgases transversal zur Hauptröhmungsrichtung des Fluidisierungsgas in die fluidisierte Partikelschicht einzublasen. Um die Feststoffbeladung und die Eindringtiefe des Treibgas-Stromes (11) zu erhöhen, wird vorgeschlagen, daß der Treibgas-Strom (11) nach Verlassen der Überschalldüse (4) mit dem Feststoffpulver beladen und über einen der Überschalldüse (4) gegenüberliegenden Diffusor (2) in die fluidisierte Partikelschicht eingeblasen wird. Ein einfacher und betriebssicherer Reaktor zur Durchführung des Verfahrens zeichnet sich durch eine Überschalldüse (4) aus, der in Strömungsrichtung des Treibgas-Stromes (11) gesehen ein Diffusor (2) gegenüberliegt, wobei zwischen Überschalldüse (4) und Diffusor (2) ein Ansaugraum (3) für ein Feststoffpulvers vorgesehen ist. (Fig. 1)

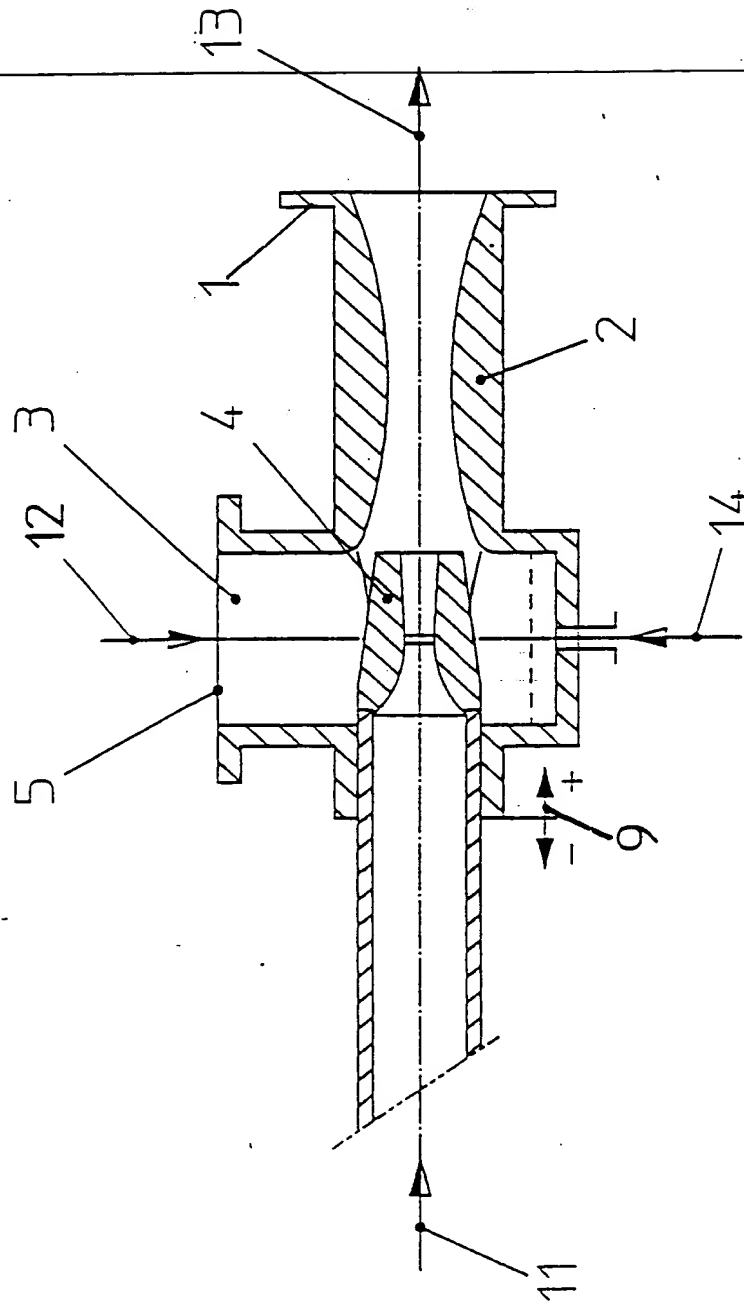
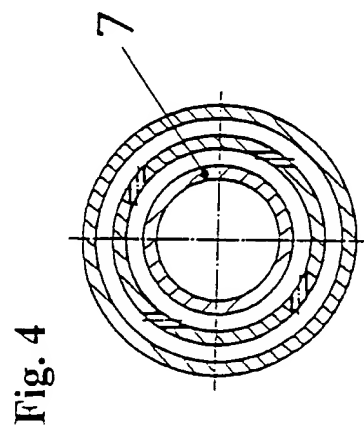
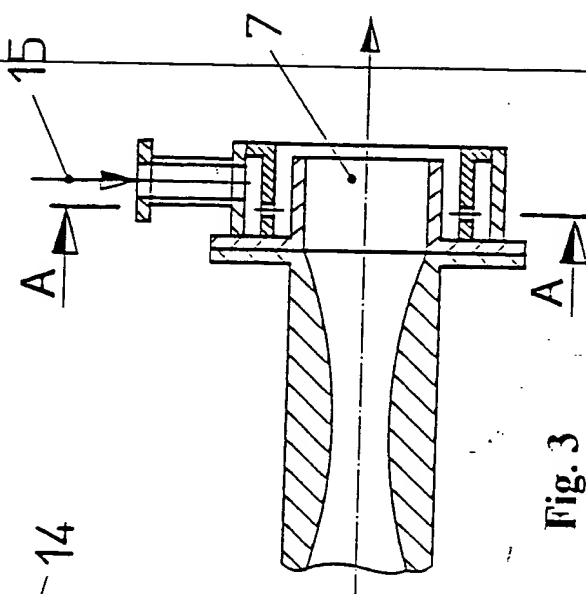
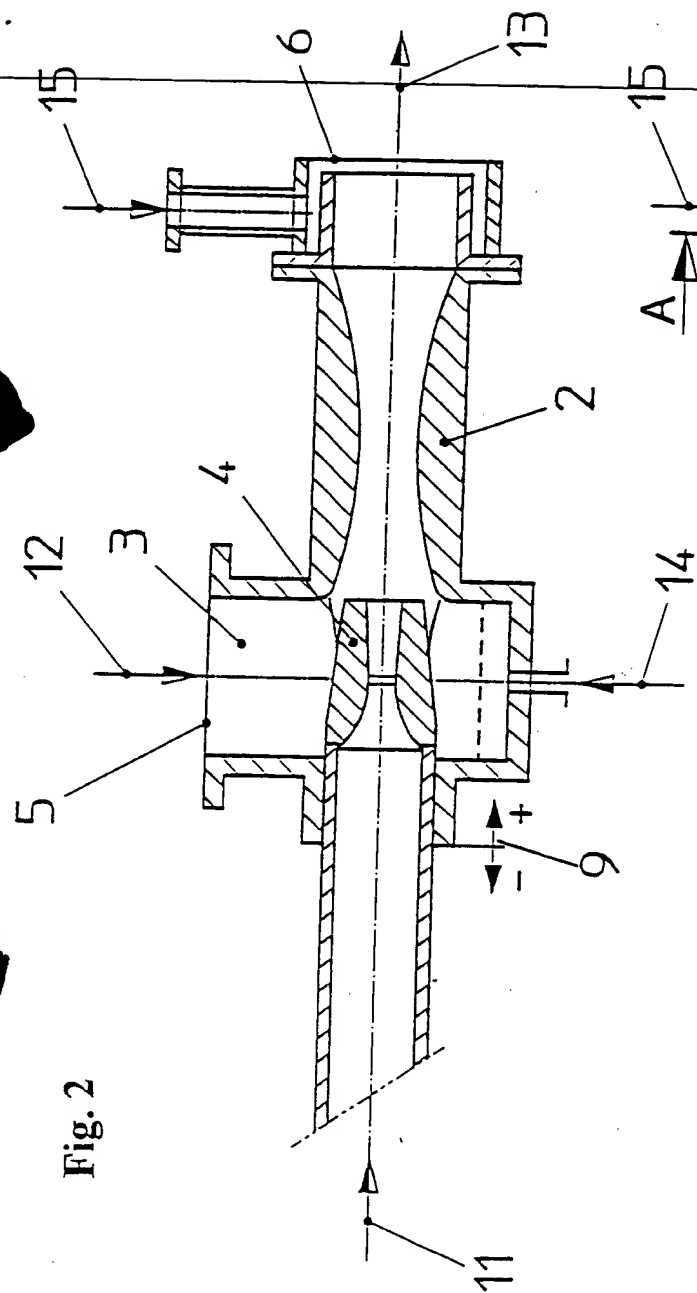


Fig. 1



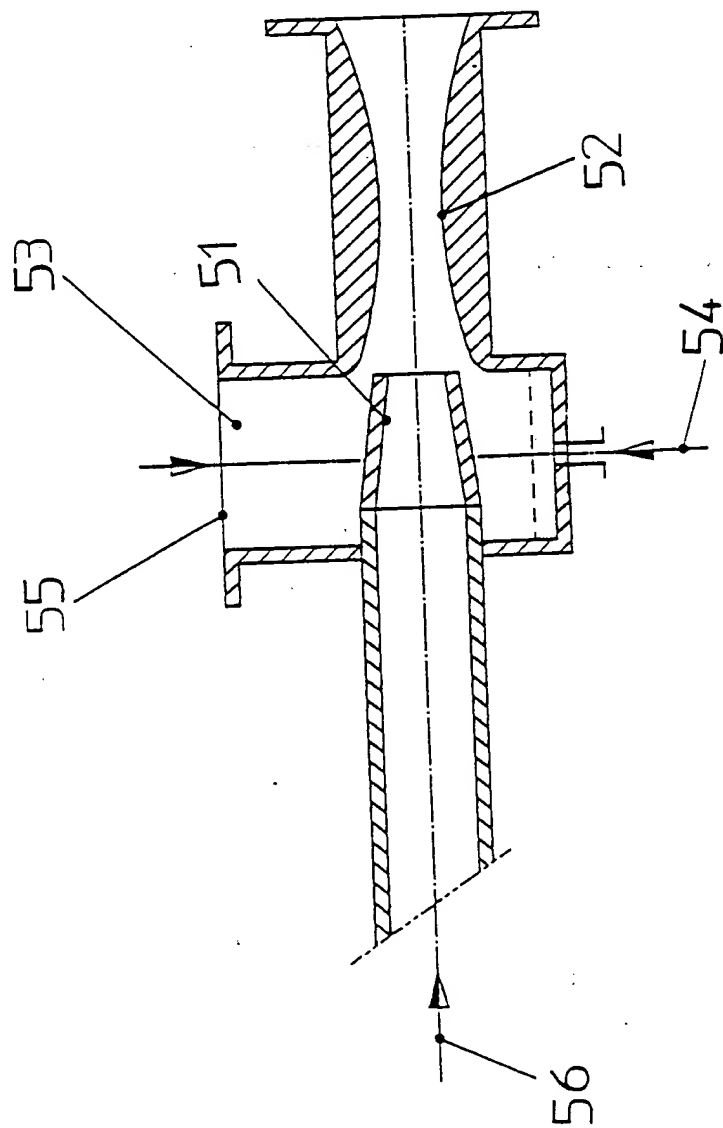


Fig. 5